

상세보기

☐ FullText Download
 ☒ 마이폴더저장
 ☒ 마이폴더보기

(54) NEGATIVE ELECTRODE FOR USE IN HIGH TEMPERATURE FUEL CELL AND MANUFACTURE THEREOF

(19) 국가 (Country) JP (Japan)
 (11) 공개번호 (Publication Number) 1990-288069 (1990.11.28) ☒ 日本語/한글(JP)
☒ 현재진행상태보기
 (13) 문헌종류 (Kind of Document) A (Unexamined Publication)
 (21) 출원번호 (Application Number) 1989-108605 (1989.04.26)
 (75) 발명자 (Inventor) HADO KAZUHIRO, TANIGUCHI NOBORU, GAMO KOJI
 (73) 출원인 (Assignee) MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD.

대표출원인명 : MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL (A00113)

(57) 요약 (Abstract)
 PURPOSE: To simplify sintering without progressing excessive sint powder or alloy powder as sintering additive into alloy powders cor and aluminium.

CONSTITUTION: Powder of metal or alloy, particularly metal or allo sintered such as nickel, copper and the like is mixed as sinterli powder containing at least nickel and aluminium. Original sinterin effect of the sintering agent and also excessive sintering is res aluminium alloy serving as base material. The molding additive ma burning and also electrode material may be sintered by moldi powders using molding additive, etc., and by assembling the mol that the battery is heated. The process of assembling the battery is

COPYRIGHT: (C)1990.JPO&JAPIO

(51) 국제특허분류 (IPC) H01M-004/86 : H01M-004/88

(30) 우선권번호 (Priority Number) -

(30) 우선권번호 (Priority Number) -

(30) 우선권번호 (Priority Number) -

WIPS 파일리 ☒ WIPS 파일리 보기☒ 파일리/검색상태 일괄보기

FullText Download



대표전화 : 02-726-1105 | 팩스 : 02-362-1289 | 메일 : help@wips.co.kr

Copyright©1998-2005 WIPS Co.,Ltd. All rights reserved.

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A) 平2-288069

⑬ Int. Cl.³

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 平成2年(1990)11月28日

H 01 M 4/86
4/88T 7623-5H
T 7623-5H

審査請求 未請求 請求項の数 7 (全4頁)

⑮ 発明の名称 高温燃料電池用負極とその製造方法

⑯ 特 願 平1-108605

⑰ 出 願 平1(1989)4月26日

⑱ 発 明 者	羽 藤 一 仁	大阪府門真市大字門真1006番地	松下電器産業株式会社内
⑱ 発 明 者	谷 口 昇	大阪府門真市大字門真1006番地	松下電器産業株式会社内
⑱ 発 明 者	蒲 生 孝 治	大阪府門真市大字門真1006番地	松下電器産業株式会社内
⑲ 出 願 人	松下電器産業株式会社	大阪府門真市大字門真1006番地	
⑲ 代 理 人	弁理士 栗野 重孝	外1名	

明 細 書

1. 発明の名称

高温燃料電池用負極とその製造方法

2. 特許請求の範囲

(1) 少なくともニッケルとアルミニウムを含む合金粉末に、焼結助剤として金属粉末または合金粉末を混合し、焼結成形してなることを特徴とする高温燃料電池用負極。

(2) 焼結助剤としての金属粉末または合金粉末が少なくともニッケルまたは銅を含むことを特徴とする請求項1記載の高温燃料電池用負極。

(3) 焼結助剤としての金属粉末または合金粉末がカーボニルニッケルであることを特徴とする請求項1記載の高温燃料電池用負極。

(4) 焼結助剤としての金属粉末または合金粉末の表面にセラミクスを被覆したことを特徴とする請求項1、2または3記載の高温燃料電池用負極。

(5) 少なくともニッケルとアルミニウムを含む合金粉末のアルミニウム含有量が1から10%の範囲であることを特徴とする請求項1記載の高温

燃料電池用負極。

(6) 少なくともニッケルとアルミニウムを含む合金粉末に、焼結助剤として金属粉末または合金粉末を混合し、成形助剤を用いて成形した後、前記成形体を電池に組み込み、電池を昇温することによって成形助剤の焼散と電極材料の焼結を行なうことを特徴とする高温燃料電池用負極の製造方法。

(7) 電極材料の焼結を行った後、表面の酸化処理を行うことを特徴とする請求項6記載の高温燃料電池用負極の製造方法。

3. 発明の詳細な説明

産業上の利用分野

本発明は、高温燃料電池用負極、特に溶融炭酸塩型燃料電池用負極とその製造方法に関するものである。

従来の技術

従来の溶融炭酸塩型燃料電池用負極は、多孔質ニッケルで構成されていた。しかし、多孔質ニッケル負極は、高温で電池の動作中に時間と共に過

特開平2-288069(2)

BEST AVAILABLE COPY

焼結が進行する問題があった。燃料電池の電極は、多孔質のガス拡散電極であるため、過焼結によって電極の反応面積が減少すると、性能が劣化して行く。

そこで、これを防止するため、近年では高融点のニッケル系合金、特にニッケル-アルミ合金等が負極材料として用いられている。

発明が解決しようとする課題

しかし、ニッケル-アルミ合金は、ニッケルと比較すると高融点である上、成分として含まれているアルミによって酸化物被膜を生成しやすい。

そのため、ミクロン単位の粉末を焼結して多孔質電極を成形する場合、例えば非常に高純度の酸素雰囲気中、しかも900℃程度の高温度雰囲気中でなければならない等、焼結成形が困難であった。

課題を解決するための手段

そこで本発明は、少なくともニッケルとアルミニウムを含む合金粉末に、焼結助剤として金属粉末または合金粉末を混合することによって、過焼結を進行させることなく、焼結成形を容易にする

粉末として、平均粒径約8μmの3%アルミニウムを含むニッケル合金粉末を用いた。これに、焼結助剤として、平均粒径5μmの銅粉末を20wt%混合した。この混合粉末を、深さ1.2mm面積200cm²のカーボン製容器に均一に吹き詰め、ニッケルメッシュで補強して、還元雰囲気中、650℃で焼結成形し負極とした。

正極にはリチウムドーパした酸化Niの多孔体を、電解質体には電解質保持体であるアルミン酸リチウムに80wt%の炭酸塩(炭酸リチウム:炭酸カリウム=62:38mol%)と成型助剤等を混合し、テープキャスト法にてタイル状に成型し、このタイル状成型体を昇温することによって成型助剤等を焼脱し電解質体として電池に組み込んだ。

また燃料ガスには水素:炭酸ガスの比が80:20のガスを60℃で加湿したものを、酸化剤として空気:炭酸ガスの比が70:30のものを適用し、650℃の温度でこの熔融炭酸塩型燃料電池の特性を調べた。

ことを図った。

作 用

少なくともニッケルとアルミニウムを含む合金粉末に、焼結助剤として金属粉末または合金粉末、特にニッケルや銅等の比較的焼結しやすい金属または合金を混合することによって、焼結助剤の効果によって当初の焼結成形を容易にし、かつ基材となるニッケル-アルミニウム系合金によって過焼結を抑制することが可能である。

また、前記の効果によって、少なくともニッケルとアルミニウムを含む合金粉末に、焼結助剤として金属粉末または合金粉末を混合し、成型助剤等を用いて成形した後、前記成型体を電池に組み込み、電池を昇温することによって成型助剤等の焼脱と電極材料の焼結を行なうことも可能であり、これによって電池組み立て時の省プロセス化を図ることができる。

実 施 例

(実施例1)

少なくともニッケルとアルミニウムを含む合金

燃料利用率40%、150mA/cm²において初期性能が0.83V、5000時間後の性能が0.73Vであった。

(実施例2)

少なくともニッケルとアルミニウムを含む合金粉末として、平均粒径約8μmの5%アルミニウムを含むニッケル合金粉末を用いた。これに、焼結助剤として、平均粒径8μmのニッケル-銅合金粉末を20wt%混合した。この混合粉末に、成型助剤として、ポリビニルブチラールとブタジエン-1,3-ブチルを、溶媒としてエタノールを加え、ボールミルによってスラリー化した後、テープキャスト法によってシート状に成形した。この成型体を還元雰囲気中、650℃で焼結成形し負極とした。

正極にはリチウムドーパした酸化Niの多孔体を、電解質体には電解質保持体であるアルミン酸リチウムに80wt%の炭酸塩(炭酸リチウム:炭酸カリウム=62:38mol%)と成型助剤等を混合し、テープキャスト法にてタイル

特開平2-288069(3)

状に成型し、このタイル状成型体を昇温することによって成形助剤等を焼散し電解質体として電池に組み込んだ。

また燃料ガスには水素：炭酸ガスの比が80：20のガスを80℃で加温したものを、酸化剤として空気：炭酸ガスの比が70：30のものを適用し、850℃の温度でこの熔融炭酸塩型燃料電池の特性を調べた。

燃料利用率40%、150mA/cm²において初期性能が0.82V、5000時間後の性能が0.75Vであった。

(実施例3)

少なくともニッケルとアルミニウムを含む合金粉末として、平均粒径約7μmの8%アルミニウムを含むニッケル合金粉末を用いた。これに、焼結助剤として、カーボニルニッケル粉末を20wt%混合した。この混合粉末に、成形助剤として、ポリビニルブチラールとフタル酸ジ-n-ブチルを、溶媒としてエタノールを加え、ボールミルによってスラリー化した後、テープキャストニング

少なくともニッケルとアルミニウムを含む合金粉末として、平均粒径約7μmの8%アルミニウムを含むニッケル合金粉末を用いた。これに、焼結助剤として、カーボニルニッケル粉末を15wt%混合した。この混合粉末に、成形助剤として、ポリビニルブチラールとフタル酸ジ-n-ブチルを、溶媒としてエタノールを加え、ボールミルによってスラリー化した後、テープキャストニングによってシート状に成形した。この成形体をそのまま電池に組み込み、電池の最初の昇温時に、成形助剤等の焼散と焼結成形を同時に行い負極とした。

正極にはリチウムドーブした酸化Niの多孔体を、電解質体には電解質保持体であるアルミン酸リチウムに80wt%の炭酸塩（炭酸リチウム：炭酸カリウム=62：38mol%）と成型助剤等を混合し、テープキャストニング法にてタイル状に成型し、このタイル状成型体を昇温することによって成形助剤等を焼散し電解質体として電池に組み込んだ。

によってシート状に成形した。この成形体を還元雰囲気中、850℃で焼結成形した後、空気雰囲気中500℃で表面を酸化処理し負極とした。

正極にはリチウムドーブした酸化Niの多孔体を、電解質体には電解質保持体であるアルミン酸リチウムに80wt%の炭酸塩（炭酸リチウム：炭酸カリウム=62：38mol%）と成型助剤等を混合し、テープキャストニング法にてタイル状に成型し、このタイル状成型体を昇温することによって成形助剤等を焼散し電解質体として電池に組み込んだ。

また燃料ガスには水素：炭酸ガスの比が80：20のガスを80℃で加温したものを、酸化剤として空気：炭酸ガスの比が70：30のものを適用し、850℃の温度でこの熔融炭酸塩型燃料電池の特性を調べた。

燃料利用率40%、150mA/cm²において初期性能が0.84V、10000時間後の性能が0.73Vであった。

(実施例4)

また燃料ガスには水素：炭酸ガスの比が80：20のガスを80℃で加温したものを、酸化剤として空気：炭酸ガスの比が70：30のものを適用し、850℃の温度でこの熔融炭酸塩型燃料電池の特性を調べた。

燃料利用率60%、150mA/cm²において初期性能が0.81V、5000時間後の性能が0.73Vであった。

(実施例5)

少なくともニッケルとアルミニウムを含む合金粉末として、平均粒径約7μmの7%アルミニウムを含むニッケル合金粉末を用いた。これに、焼結助剤として、平均粒径約0.02μmのアルミナ粉末を被覆したカーボニルニッケル粉末を30wt%混合した。この混合粉末に、成形助剤として、ポリビニルブチラールとフタル酸ジ-n-ブチルを、溶媒としてエタノールを加え、ボールミルによってスラリー化した後、テープキャストニングによってシート状に成形した。この成形体をそのまま電池に組み込み、電池の最初の昇温時に、成

特開平2-288069(4)

形助剤等の焼散と焼結成形を同時に行い負極とした。

正極にはリチウムドーパした酸化Niの多孔体を、電解質体には電解質保持体であるアルミン酸リチウムに80wt%の炭酸塩(炭酸リチウム:炭酸カリウム=82:38mol%)と成型助剤等を混合し、テープキャスト法にてタイル状に成型し、このタイル状成型体を昇温することによって成型助剤等を焼散し電解質体として電池に組み込んだ。

また燃料ガスには水素:炭酸ガスの比が80:20のガスを60℃で加温したものを、酸化剤として空気:炭酸ガスの比が70:30のものを適用し、850℃の温度でこの溶融炭酸塩型燃料電池の特性を調べた。

燃料利用率80%、150mA/cm²において初期性能が0.82V、10000時間後の性能が0.75Vであった。

以上、本実施例1から5に示したように、明らかに本発明の有効性が確認できた。

れることなく、高性能かつ高信頼性の高温燃料電池、特に溶融炭酸塩型燃料電池用負極を容易に得ることができる。

代理人の氏名 弁理士 栗野重孝ほか1名

なお、上記実施例では溶融炭酸塩型燃料電池用負極として適用した場合を示したが、これは他の高温燃料電池、例えば固体電解質型燃料電池の負極に適用してももちろんよい。

また、成型助剤としてポリビニルブタールやフタル酸ジ-n-ブチルを用い、テープキャスト法によって成形した例を示したが、これは他の成型助剤や他の成形方法であってももちろんよい。

発明の効果

以上のように、本発明は、少なくともニッケルとアルミニウムを含む合金粉末に、焼結助剤として金属粉末または合金粉末を混合し、焼結成形した電極を負極とすることによって、あるいは、少なくともニッケルとアルミニウムを含む合金粉末に、焼結助剤として金属粉末または合金粉末を混合し、成型助剤等を用いて成形した後、前記成型体を電池に組み込み、電池を昇温することによって成型助剤等の焼散と電極材料の焼結を行なった電極を負極とすることによって、過焼結を進行さ